



Express Mail Label No. \_\_\_\_\_

Dated: \_\_\_\_\_

Docket No.: 20195/0200498-US0  
(PATENT)

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re Patent Application of:  
Eugen Unger et al.

Application No.: 10/712,767

Confirmation No.: 7403

Filed: November 12, 2003

Art Unit: N/A

For: PROCESS FOR PRODUCING A  
NANOELEMENT ARRANGEMENT, AND  
NANOELEMENT ARRANGEMENT

Examiner: Not Yet Assigned

**CLAIM FOR PRIORITY AND SUBMISSION OF DOCUMENTS**

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Dear Sir:

Applicant hereby claims priority under 35 U.S.C. 119 based on the following prior foreign application filed in the following foreign country on the date indicated:

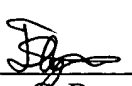
<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Date</u>
Germany	102 52 607.9	November 12, 2002

**BEST AVAILABLE COPY**

In support of this claim, a certified copy of the said original foreign application is filed herewith.

Dated: September 10, 2004

Respectfully submitted,

By  <sup>RYAN BARRESON</sup>  
(53,972)  
\_\_\_\_\_  
Laura C. Brutman

Registration No.: 38,395  
DARBY & DARBY P.C.  
P.O. Box 5257  
New York, New York 10150-5257  
(212) 527-7700  
(212) 753-6237 (Fax)  
Attorneys/Agents For Applicant

# BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

**Aktenzeichen:** 102 52 607.9

**Anmeldetag:** 12. November 2002

**Anmelder/Inhaber:** Infineon Technologies AG, München/DE

**Bezeichnung:** Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-  
Anordnung und Nanoelement-Anordnung

**IPC:** B 82 B 3/00

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 7. November 2003  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

Schmidt C.

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

**Beschreibung****Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung und Nanoelement-Anordnung**

5

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung und eine Nanoelement-Anordnung.

10

Die herkömmliche Silizium-Mikroelektronik wird bei weiter voranschreitender Verkleinerung an ihre Grenzen stoßen. Bei einem Feldeffekttransistor nehmen mit fortgesetzter Miniaturisierung störende Kurzkanal-Effekte zu, welche die Leitungsfähigkeit des Feldeffekttransistors einschränken. Zu den Problemen, die bei einem einzelnen Bauelement auftreten, kommt bei einer Speicheranordnung noch eine begrenzte Skalierbarkeit des Speichermediums hinzu, beispielsweise kann die Kapazität in einem DRAM ("dynamic random access memory") nicht beliebig skaliert werden.

15

20

Als mögliche Nachfolgetechnologie für die Silizium-Mikroelektronik wird die Verwendung von Kohlenstoffnanoröhren diskutiert. Grundlagen über Kohlenstoffnanoröhren sind beispielsweise in [1] beschrieben. Es ist bekannt, dass Kohlenstoffnanoröhren (in Abhängigkeit von den Röhren-Parametern) ein von halbleitend bis metallisches elektrisches Leitfähigkeitsverhalten aufweisen.

25

30

Kohlenstoffnanoröhren ("carbon nanotubes") werden wegen ihrer elektrischen Eigenschaften nicht nur als mögliche Alternative zu herkömmlichen aktiven Elementen wie Feldeffekttransistoren, Dioden, etc., sondern aufgrund ihrer großen Stromtragfähigkeit und geringer Dimension im Bereich von Nanometern als Ersatz für herkömmliches Metallisierungsmaterial (Aluminium, Kupfer, etc.) untersucht. Da bei der Kopplung elektrischer Schalterelemente in einem Schaltkreis nicht nur einfache Punkt-zu-Punkt-Leiterbahnen, sondern auch Verzweigungen elektrischer Leitungen zu

35

realisieren sind, besteht ein Bedarf, Verzweigungen von Strompfaden unter Verwendung von Kohlenstoffnanoröhren zu ermöglichen.

5 Aus [2] ist bekannt, eine Y-förmige Verzweigung von Kohlenstoffnanoröhren dadurch zu realisieren, dass ein Katalysatormaterial-Spot in einem Endabschnitt eines Y-förmigen Kanals in einem Aluminiumoxid-Templat ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) ausgebildet wird. Nachfolgend wird gemäß [2] ausgehend von  
10 dem Katalysatormaterial-Spot eine Y-förmig verzweigte Kohlenstoffnanoröhre in dem Kanal mittels Pyrolyse von Azetylen ausgebildet.

Allerdings ist das aus [2] bekannte Verfahren auf das  
15 Ausbilden von verzweigten Kohlenstoffnanoröhren im Inneren eines Templats beschränkt.

Stellenweise kann sich bei der Synthese von Kohlenstoffnanoröhren, beispielsweise unter Verwendung eines  
20 CVD-Verfahrens ("Chemical Vapour Deposition"), zufällig eine Verzweigung von Kohlenstoffnanoröhren ergeben. Allerdings ist das räumlich definierte Ausbilden von Verzweigungen von Kohlenstoffnanoröhren gemäß diesem Verfahren nicht steuerbar.

25 Aus [3] ist bekannt, auf einem Substrat Eisen-Cluster vorgegebener Dimension abzuscheiden, und ausgehend von den für das Aufwachsen von Kohlenstoffnanoröhren katalytisch wirksamen Eisen-Clustern unter Verwendung eines CVD-Verfahrens Kohlenstoffnanoröhren aufzuwachsen. Der  
30 Durchmesser der Kohlenstoffnanoröhren ist mittels Vorgebens des Durchmessers der Cluster einstellbar.

[4] offenbart ein Verfahren, gemäß welchem Metall-Cluster aus 3d-Übergangsmetallen hergestellt werden können.

35

Der Erfindung liegt das Problem zugrunde, ein anderes Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung und eine

andere Nanoelement-Anordnung anzugeben, bei denen Verzweigungen von Nanoelementen vorgebbar sind.

5 Das Problem wird durch ein Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung und durch eine Nanoelement-Anordnung mit den Merkmalen gemäß den unabhängigen Patentansprüchen gelöst.

10 Bei dem Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung wird ein erstes, bereits fertig hergestelltes, Nanoelement zumindest teilweise mit Katalysatormaterial zum Katalysieren des Aufwachsens von Nanoelementen bedeckt. Nachfolgend wird auf dem Katalysatormaterial mindestens ein zweites Nanoelement aufgewachsen.

15 Die Nanoelement-Anordnung der Erfindung enthält ein erstes Nanoelement, das zumindest teilweise mit Katalysatormaterial zum Katalysieren des Aufwachsens von Nanoelementen bedeckt ist. Ferner enthält die Nanoelement-Anordnung mindestens ein  
20 zweites Nanoelement, das auf dem Katalysatormaterial aufgewachsen ist.

Eine Grundidee der Erfindung ist darin zu sehen, dass mittels Bedeckens definiert vorgebbarer Teilbereiche eines ersten  
25 bereits fertig hergestellten Nanoelements eine Stelle oder mehrere Stellen auf dem ersten Nanoelement vorgebbar ist oder sind, auf welcher oder welchen bevorzugt mindestens ein zweites Nanoelement aufwachsbar ist. Diese Stellen können dadurch vorgegeben werden, dass das Katalysatormaterial  
30 gezielt auf gewünschten Bereichen des ersten Nanoelements abgeschieden wird. Da das Katalysatormaterial eine für das Aufwachsen von Nanoelementen katalytische Wirkung aufweist, erfolgt bei einem nachfolgenden Verfahrensschritt zum Ausbilden von zweiten Nanoelementen ein Aufwachsen der  
35 zweiten Nanoelemente bevorzugt auf den Katalysator-Bereichen auf dem ersten Nanoelement. Da es technologisch möglich ist, Cluster aus 3d-Übergangsmetallen mit gezielter Dimension im

Nanometer-Bereich herzustellen, und da viele 3d-Übergangsmetalle (z.B. Eisen, Kobalt, Nickel) zum Beispiel das Ausbilden von Kohlenstoffnanoröhren katalytisch unterstützen, ist ein hochgenaues Definieren von

5 Aufwachsstellen von zweiten Nanoelementen auf der Oberfläche eines ersten Nanoelements ermöglicht.

Erfindungsgemäß ist zum Herstellen verzweigter Netzwerke von Nanoelementen ein Substrat entbehrlich.

10

Ferner sind komplexe Vielfachverzweigungen von Nanoelementen entsprechend den Anforderungen einer jeweiligen Anwendung, z.B. eines integrierten Schaltkreises mit verzweigten Leiterbahnen, möglich.

15

Die Erfindung beruht auf der experimentellen Erkenntnis, dass Katalysatormaterial, zum Beispiel in Form metallischer Cluster, besonders gut an Nanoelementen, wie beispielsweise Kohlenstoffnanoröhren, anhaftet, so dass eine sichere  
20 Möglichkeit geschaffen ist, die Stellen des späteren Aufwachsens eines zweiten Nanoelements vorzugeben und ein dauerhaftes Anhaften des Katalysatormaterials zu gewährleisten. Beispielsweise kann ein Kobalt-Cluster von einer Monoschicht eines organischen Materials umgeben sein,  
25 welche Monoschicht mit Kohlenstoffnanoröhren eine gute Haftwirkung aufweist.

30

Da Katalysatormaterial zum Aufwachsen von Nanoelementen in vielen Fällen elektrisch gut leitfähig ist (beispielsweise  
30 3d-Übergangsmetalle wie Eisen, Kobalt oder Nickel), ist eine elektrisch leitfähige Kopplungsstelle zwischen den Nanoröhren ermöglicht. Somit kann eine durchgehende leitfähige Verbindung zwischen den beispielsweise elektrisch leitfähigen Nanoelementen und dem Katalysatormaterial als Kopplungsmittel  
35 realisiert werden.

Bevorzugte Weiterbildungen der Erfindung ergeben sich aus den abhängigen Ansprüchen.

Das Katalysatormaterial kann auf dem ersten Nanoelement in  
5 Gestalt von mindestens einem Cluster aufgebracht werden. Das  
Herstellen derartiger Cluster aus 3d-Übergangsmetallen kann  
gemäß den in [3] oder [4] beschriebenen Verfahren erfolgen.  
Mittels Einstellens der Größe der metallischen Cluster kann  
sichergestellt werden, ob auf dem jeweiligen Cluster eines  
10 oder mehrere zweite Nanoelemente aufgewachsen werden können  
bzw. welchen Durchmesser und somit welche elektrischen  
Eigenschaften das aufzuwachsende zweite Nanoelement haben  
soll. Ferner können derartige Cluster beispielsweise von  
einer dünnen Schicht aus organischem Material zum Beispiel  
15 Tenside umgeben sein, wodurch das Ankoppeln der Cluster an  
die ersten und zweiten Nanoelemente erleichtert ist.

Das Katalysatormaterial kann auf dem ersten Nanoelement  
aufgebracht werden, indem das erste Nanoelement in einer  
20 Suspension mit Clustern aus Katalysatormaterial in  
Wirkkontakt gebracht wird, und nachfolgend das erste  
Nanoelement mit mindestens einem daran angelagerten Cluster  
aus der Suspension entfernt wird. Werden fertige erste  
Nanoelemente in eine Suspension aus Clustern eingebracht, so  
25 binden die Cluster mit der Oberfläche der Nanoelemente quasi  
von selbst. Dadurch ist ein einfaches Verfahren zum Ausbilden  
von Clustern auf der Oberfläche der ersten Nanoelemente  
geschaffen.

30 Das erste Nanoelement kann mit dem mindestens einen daran  
angelagerten (bzw. chemisch oder physikalisch gebundenen)  
Cluster resuspendiert werden und auf einem Substrat  
aufgebracht werden. Mit anderen Worten kann das erste  
Nanoelement, an dem einer oder mehrere Cluster angebracht ist  
35 oder sind, in einer geeigneten Lösung/Suspension  
resuspendiert werden, und beispielsweise unter Verwendung



einer Pipette/Mikropipette oder mittels Aufsprühens auf ein beliebiges Substrat aufgebracht werden.

Das erste Nanoelement mit dem mindestens einen daran  
5 angelagerten Cluster kann einem Verfahrensschritt zum  
Ausbilden des mindestens einen zweiten Nanoelements  
unterzogen werden, derart, dass das mindestens eine zweite  
Nanoelement an dem mindestens einen Cluster aufgewachsen  
10 wird. Die Cluster bilden aufgrund ihrer Katalysatorfunktion  
anschaulich eine Keimstelle für das Aufwachsen eines zweiten  
Nanoelements, wodurch ein zweites Nanoelement auf dem ersten  
Nanoelement aufwächst.

Zum Ausbilden des mindestens einen zweiten Nanoelements auf  
15 dem Katalysatormaterial-Cluster des ersten Nanoelements wird  
vorzugsweise ein CVD-Verfahren ("Chemical Vapour Deposition")  
eingesetzt. Hierfür kann beispielsweise Azetylen in eine CVD-  
Verfahrenskammer eingeleitet werden, wodurch das Ausbilden  
des zweiten Nanoelements in Gang gesetzt wird. Dieses wird  
20 infolge der für das Aufwachsen von Nanoelementen  
katalytischen Wirkung vorzugsweise auf dem ersten Nanoelement  
aufgewachsen.

Das Katalysatormaterial zwischen dem ersten und dem  
25 mindestens einen zweiten Nanoelement kann anschließend  
vernickelt werden, d.h. zumindest an der Oberfläche mit  
Nickelmaterial versehen werden. Zur Verbesserung eines  
elektrischen Übergangswiderstandes an der Verzweigung  
zwischen einem ersten und einem zweiten Nanoelement kann  
30 beispielsweise bei Verwendung von Eisen-Material als  
Katalysatormaterial eine durch das bereits vorhandene Eisen-  
Material katalysierte nasschemische stromlose Vernickelung am  
Verzweigungspunkt durchgeführt werden, um die elektrischen  
Eigenschaften des Verzweigungspunkts zu verbessern.

35 Ein Teilbereich des ersten Nanoelements kann mit einer  
Schutzschicht bedeckt werden, die vorzugsweise von einer für

das Aufwachsen von Nanoelementen katalytischen Wirkung frei ist. Anders ausgedrückt ist das Material der Schutzschicht vorzugsweise so gewählt, dass Nanoelemente auf der Schutzschicht nicht oder nur in geringfügigem Maße aufwachsen können. In einem solchen Fall ist ein Aufwachsen von Nanoelementen in nennenswerter Menge nur dort möglich, wo das erste Nanoelement von der Schutzschicht frei ist. Mittels Bedeckens eines Teilbereichs des ersten Nanoelements mit einer derartigen Schutzschicht, beispielsweise unter Verwendung eines Lithographie- und eines Ätz-Verfahrens, können definiert Oberflächenbereiche des Nanoelements freigelegt werden, auf denen Katalysatormaterial-Cluster aufgebracht werden können. Wird dann die Schutzschicht entfernt, so verbleiben Katalysatormaterial-Spots lediglich an den vorgegebenen Oberflächenbereichen des ersten Nanoelements. Dadurch erfolgt ein Aufwachsen von zweiten Nanoelementen nur auf solchen Oberflächenbereichen, die zuvor von einer Bedeckung der Schutzschicht frei waren und die mit Katalysatormaterial-Spots bedeckt sind. Dadurch ist ein besonders gutes räumliches Definieren derjenigen Bereiche auf dem ersten Nanoelement möglich, auf denen ein zweites Nanoelement aufgewachsen werden kann. Es ist auch möglich, die Schutzschicht erst nach dem Aufwachsen des mindestens einen zweiten Nanoelements zu entfernen.

Als Schutzschicht kann beispielsweise Lack, zum Beispiel ein Photolack, ein Tensid, ein anderes organisches Material, ein oxidiertes Material oder ein von einer für das Aufwachsen von Nanoelementen katalytischen Wirkung freies Metall, beispielsweise Gold-Material, verwendet werden.

Als Katalysatormaterial können beispielsweise Eisen, Kobalt oder Nickel, eine Kombination der genannten Materialien oder andere 3d-Übergangsmetalle verwendet werden. Es kann eine Legierung von Eisen und/oder Kobalt und/oder Nickel mit Aluminium, Titan, Molybdän und/oder Platin verwendet werden. Die genannten Materialien sind als Katalysatormaterial

insbesondere dann vorteilhaft verwendbar, wenn als Nanoelement eine Kohlenstoffnanoröhre verwendet wird.

5 Im Weiteren wird die erfindungsgemäße Nanoelement-Anordnung näher beschrieben. Ausgestaltungen des Verfahrens zum Herstellen der Nanoelement-Anordnung gelten auch für die Nanoelement-Anordnung und umgekehrt.

10 Bei der erfindungsgemäßen Nanoelement-Anordnung kann nur ein Teil des ersten Nanoelements mit Katalysatormaterial zum Katalysieren des Aufwachsens von Nanoelementen bedeckt sein. Indem ein anderer Teilbereich des ersten Nanoelements von derartigem Katalysatormaterial frei ist, ist ein gezieltes Vorgeben derjenigen Stellen ermöglicht, auf denen ein zweites  
15 Nanoelement aufgewachsen werden kann.

Das erste Nanoelement kann in einer in einem Substrat eingebrachten Pore aufgewachsen werden. Auf diese Weise ist es beispielsweise möglich, das erste Nanoelement als  
20 vertikales Nanoelement auszubilden, welches sich entlang einer vorzugsweise vertikalen, in einem Substrat eingebrachten Pore erstreckt. Ragt das erste Nanoelement aus der Pore hervor, und ist an dem überstehenden Bereich des Nanoelements ein Katalysatormaterial-Spot ausgebildet, so  
25 kann ein zweites Nanoelement auf dem ersten Nanoelement aufgewachsen werden.

Das erste Nanoelement kann in der Pore auf einer Metallisierungsebene in dem Substrat aufgewachsen sein. Auf  
30 diese Weise ist es ermöglicht, dass das erste Nanoelement bereits an einer Metallisierungsebene elektrisch angekoppelt ist, wobei die Metallisierungsebene wiederum mit einem integrierten Schaltkreis in dem Substrat gekoppelt sein kann oder ein Teil davon sein kann. Da das erste Nanoelement bzw.  
35 das zweite Nanoelement vorzugsweise elektrisch leitfähig oder halbleitend ist, kann eine durchgehende elektrisch leitfähige Verbindung zwischen dem integrierten Schaltkreis und dem

ersten bzw. dem zweiten Nanoelement geschaffen werden. Dies ist zum Ausbilden eines integrierten Schaltkreises mit einer Dimension im Nanometer-Bereich vorteilhaft.

5 Das erste und/oder das mindestens eine zweite Nanoelement und/oder mindestens ein zusätzliches Nanoelement können aufeinander und/oder nebeneinander aufgewachsen sein. Auf diese Weise kann eine flächige oder eine dreidimensionale Anordnung von Nanoelementen bereitgestellt werden, so dass  
10 anschaulich ein Netzwerk von Leiterbahnen realisiert werden kann, welches für viele Anwendungen (beispielsweise Speicherzellen-Schaltkreise oder Logik-Schaltkreise) geeignet ist.

15 Das erste und/oder das mindestens eine zweite Nanoelement kann eine Nanoröhre, ein Bündel von Nanoröhren oder ein Nanostäbchen aufweisen. Das Nanostäbchen kann zum Beispiel Silizium, Germanium, Indiumphosphid, Galliumnitrid, Galliumarsenid, Zirkoniumoxid und/oder ein Metall aufweisen.  
20 Die Nanoröhre kann beispielsweise eine Kohlenstoffnanoröhre, eine Kohlenstoff-Bor-Nanoröhre, eine Kohlenstoff-Stickstoff-Nanoröhre, eine Wolframsulfid-Nanoröhre, oder eine Chalkogenid-Nanoröhre sein.

25 Das erste und/oder das mindestens eine zweite Nanoelement kann beispielsweise eine Kohlenstoffnanoröhre sein. In diesem Falle sind Eisen, Kobalt und/oder Nickel als Katalysatormaterial bevorzugt. Es kann auch eine Legierung von Eisen und/oder Kobalt und/oder Nickel mit Aluminium,  
30 Titan, Molybdän und/oder Platin verwendet werden.

Die Nanoelement-Anordnung der Erfindung kann einen integrierten Schaltkreis aufweisen, der mit dem ersten und/oder dem mindestens einen zweiten Nanoelement gekoppelt  
35 ist. Somit können die Nanoelemente mit einem integrierten Schaltkreis verschaltet sein, z.B. um eine Ankopplung des integrierten Schaltkreises an miniaturisierte Komponenten zu

realisieren.

5 Ferner können bei der Nanoelement-Anordnung die Nanoelemente ein mehrfach verzweigtes Netzwerk bilden. Mit anderen Worten können die miteinander gekoppelten Nanoelemente in beliebig komplexer Weise mehrfach bzw. vielfach verzweigt sein, z.B. um ein erwünschtes Netzwerk elektrischer Leitungen zu bilden.

10 Anschaulich können gemäß der Erfindung bereits fertig hergestellte Kohlenstoffnanoröhren mit einer katalytisch aktiven Metallsuspension derart aktiviert werden, dass von den Partikeln der Metallsuspension ausgehend zusätzliche Nanoröhren verzweigt werden können. Hierbei ist es möglich, bereits ausgebildete Kohlenstoffnanoröhren entweder entlang  
15 ihrer kompletten Länge oder nur entlang eines begrenzten Abschnitts zu aktivieren, indem der übrige Bereich unter Verwendung eines Lacks, einer Oxidschicht oder eines katalytisch im Wesentlichen inaktiven Metalls abgedeckt wird.

20 Werden Vias (das heißt Kontaktlöcher zwischen unterschiedlichen Metallisierungsebenen in einem Substrat) mit Kohlenstoffnanoröhren gefüllt, so lässt sich mit dem erfindungsgemäßen Verfahren die Fülldichte des Vias mit Kohlenstoffnanoröhren erhöhen. Hierfür kann beispielsweise  
25 das Via mit einer ersten Kohlenstoffnanoröhre, die von einem Katalysatormaterial ummantelt ist, gefüllt werden, und nachfolgend auf dem Katalysatormaterial auf der ersten Kohlenstoffnanoröhre zweite Kohlenstoffnanoröhre zum Erhöhen der Fülldichte des Vias ausgebildet werden.

30 Erfindungsgemäß werden Metall-Cluster geeigneter Größe und Reaktivität an bereits ausgebildete erste Kohlenstoffnanoröhren gebunden und nachfolgend einem weiteren Syntheseschritt unterzogen. Dieser Syntheseschritt kann  
35 beispielsweise in einem Ofen durchgeführt werden, in den bei 300°C bis 1000°C Azetylen, Ethen, oder Methan unter reduziertem oder Atmosphären-Druck eingeleitet wird. Ein CVD-

Verfahren ist zum Ausbilden der zweiten Nanoelemente geeignet.

Die Metall-Cluster, welche das Katalysatormaterial bilden  
5 können, können beispielsweise gemäß den aus [3], [4]  
beschriebenen Verfahren hergestellt werden.

Zum Beispiel können mehrwandige Kohlenstoffnanoröhren als  
erste Nanoelemente verwendet werden. Diese können unter  
10 Verwendung eines CVD-Verfahrens hergestellt sein. Die  
hergestellten Kohlenstoffnanoröhren können direkt verwendet  
werden oder zur Verbesserung der Löslichkeit mit einer  
geeigneten Chemikalie (beispielsweise Natriumhypochlorit,  
NaOCl) oxidiert werden. Die Kohlenstoffnanoröhren können bei  
15 Raumtemperatur mit einer Suspension aus Eisen-Clustern in  
Toluol behandelt werden. Die Eisen-Cluster können aus  
Eisenpentacarbonyl ( $\text{Fe}(\text{CO})_5$ ) und Ölsäure (Oleinsäure, (Z)-  
oder cis-9-Octadecensäure,  $\text{C}_{18}\text{H}_{34}\text{O}_2$ ) hergestellt werden. Das  
in Suspension befindliche Kohlenstoffnanoröhren-Material kann  
20 abfiltriert und von Lösungsmittelresten befreit werden. Es  
kann mit Dimethylformamid ( $\text{C}_3\text{H}_7\text{NO}$ ), resuspendiert werden. Ein  
Tropfen dieser Lösung kann auf ein Substrat aufgebracht  
werden oder es kann eine mit Isopropanol verdünnte Lösung  
aufgesprüht werden. Während dieses Verfahrensschrittes kann  
25 ein Teil des Substrats zur Durchführung eines nachfolgenden  
Liftoff-Strukturierungsverfahrens, beispielsweise mittels  
Photolack, abgedeckt sein. Auf diese Weise kann  
sichergestellt werden, dass Kohlenstoffnanoröhren nur auf  
gewünschten Oberflächenbereichen eines Substrats aufgebracht  
30 werden. Nach dem Aufbringen der Lösung und einem möglichen  
nachfolgenden Liftoff-Verfahren zum Entfernen des Photolacks  
kann das Substrat nach Trocknung in einen Reaktionsofen  
gebracht werden. Nachfolgend können zweite  
Kohlenstoffnanoröhren von der ersten Kohlenstoffnanoröhre aus  
35 verzweigt synthetisiert werden. Anschließend kann zur  
Verbesserung des elektrischen Übergangswiderstands an einer  
jeweiligen Verzweigung eine vorzugsweise nasschemische

stromlose Vernickelung am Verzweigungspunkt durchgeführt werden.

Es ist anzumerken, dass erfindungsgemäß nicht nur Metall-  
5 Cluster aus 3d-Elementen, wie Eisen, Kobalt oder Nickel, die aus den entsprechenden Carbonylen hergestellt sind, als Katalysatormaterial verwendet werden können, sondern beispielweise auch solche Cluster, die aus Salzen organischer  
10 Säuren mit Hilfe von Diolen als Reduktionsmittel, dargestellt werden können. Auch sind Legierungen aus oben genannten Metallen mit Al, Ti, Mo, Pd, Pt, Ru, Ph, Os oder Ir möglich

15 Ausführungsbeispiele der Erfindung sind in den Figuren dargestellt und werden im weiteren näher erläutert.

Es zeigen:

Figuren 1A, 1B schematische Ansichten von Suspensionen  
während eines Verfahrens zum Herstellen von mit  
20 Katalysatormaterial-Clustern bedeckten ersten Kohlenstoffnanoröhren gemäß einem Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung gemäß einem bevorzugten Ausführungsbeispiel der Erfindung,

25 Figuren 2A, 2B Querschnittsansichten von Schichtenfolgen während des Verfahrens zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung gemäß dem bevorzugten Ausführungsbeispiel der Erfindung,

30 Figur 2C eine Querschnittsansicht einer Nanoelement-Anordnung gemäß dem bevorzugten Ausführungsbeispiel der Erfindung,

Figuren 3A bis 3C elektronenmikroskopische Aufnahmen von  
35 Nanoelement-Anordnungen gemäß bevorzugten Ausführungsbeispielen der Erfindung.

Gleiche oder ähnliche Komponenten in unterschiedlichen Figuren sind mit gleichen Bezugsziffern versehen.

Die Darstellungen in den Figuren sind schematisch und nicht  
5 maßstäblich.

Im Weiteren wird beziehend auf Fig.1A, Fig.1B, Fig.2A bis  
Fig.2C ein Verfahren zum Herstellen einer  
Kohlenstoffnanoröhren-Anordnung gemäß einem bevorzugten  
10 Ausführungsbeispiel der Erfindung beschrieben.

In Fig.1A ist ein Behälter 100 gezeigt, in dem eine  
Suspension aus Toluol-Lösungsmittel 101 und Eisen-Clustern  
102 enthalten ist. Die Eisen-Cluster 102 sind von einer  
15 dünnen Schicht aus Ölsäure umgeben (nicht gezeigt).

In Fig.1B ist der Betriebszustand des Behälters 100 gezeigt,  
nachdem unter Verwendung eines CVD-Verfahrens  
Kohlenstoffnanoröhren 110 in die Suspension eingefüllt worden  
20 sind. Die Kohlenstoffnanoröhren 110 sind entlang des größten  
Teils ihrer Länge mit einer Schutzschicht (nicht gezeigt) aus  
einem Photolack umgeben, lediglich in einem Umgebungsbereich  
von einem Endabschnitt der Kohlenstoffnanoröhren 110 sind die  
Kohlenstoffnanoröhren 110 von der Schutzschicht frei. Nach  
25 Einfüllen der teilweise mit der Schutzschicht bedeckten  
Kohlenstoffnanoröhren 110 in die Suspension aus Toluol 101  
und Eisen-Clustern 102 lagern sich Eisen-Cluster 102 nur an  
denjenigen Stellen der Kohlenstoffnanoröhren 110 an, an denen  
diese von der Schutzschicht frei sind. Anschaulich dient der  
30 Ölsäuremantel, von welchem die Eisen-Cluster 102 umgeben  
sind, als Haftschicht zum Anhaften der Eisen-Cluster 102 an  
die Kohlenstoffnanoröhren 110. Dadurch ist es ermöglicht,  
dass nur an räumlich definierten Stellen der  
Kohlenstoffnanoröhren Eisen-Cluster 102 als  
35 Katalysatormaterial-Spots zum Katalysieren eines  
nachfolgenden Ausbildens zweiter Kohlenstoffnanoröhren  
angelagert werden.



In einem weiteren Verfahrensschritt werden die Komplexe aus Eisen-Clustern 102 und Kohlenstoffnanoröhren 110 von dem Lösungsmittel 101 getrennt und in Dimethylformamid 201 resuspendiert.

Im Weiteren wird bezugnehmend auf die in den Fig.2A bis Fig.2C gezeigten Schichtenfolgen beschrieben, wie unter Verwendung der resuspendierten und mit Eisen-Clustern 102 versehenen Kohlenstoffnanoröhren 110 eine Kohlenstoffnanoröhren-Anordnung gemäß einem bevorzugten Ausführungsbeispiel der Erfindung hergestellt wird.

Die in Fig.2A gezeigte Schichtenfolge 200 ist gebildet aus einem Silizium-Substrat 202, in welchem ein integrierter Schaltkreis 203 ausgebildet ist. In einem Kontaktloch in dem Silizium-Substrat 202 ist ein elektrisch leitfähiges Kopplungsmittel 204 ausgebildet. Auf der Oberfläche des Silizium-Substrats 202 ist eine Photoresist-Schicht 205 aufgebracht und unter Verwendung eines Lithographie- und eines Ätz-Verfahrens gemeinsam mit dem Silizium-Substrat 202 zum Ausbilden des Kontaktlochs geätzt. Die Photoresist-Schicht 205 ist aus einem derartigen Material gewählt, dass Kohlenstoffnanoröhren sich an diesem Material nicht oder nur schlecht anlagern. Mittels einer Mikropipette wird auf das Kontaktloch der Schichtenfolge 200 ein Tropfen der Suspension aus Dimethylformamid 201 und der mit dem Eisen-Cluster 102 versehenen Kohlenstoffnanoröhre 110 aufgebracht. Die Kohlenstoffnanoröhre 110 wird vertikal in dem Kontaktloch orientiert und mit dem elektrisch leitfähigen Kopplungsmittel 204 zum Ankoppeln an den integrierten Schaltkreis 303 gebunden.

Um die in Fig.2B gezeigte Schichtenfolge 210 zu erhalten, wird das Dimethylformamid-Material 201 mittels Trocknens entfernt. Ferner wird unter Verwendung eines geeigneten Ätz-Verfahrens das Material der Photoresist-Schicht 205 entfernt.

Das Ätz-Verfahren ist ein selektives Ätz-Verfahren, das derart gewählt wird, dass infolge des Ätzens zwar die Photoresist-Schicht 205, nicht aber die Kohlenstoffnanoröhre 110 samt Katalysatormaterial-Spot 102 entfernt wird.

5

Um die in Fig.2C gezeigte Kohlenstoffnanoröhren-Anordnung 220 gemäß dem bevorzugten Ausführungsbeispiel der Erfindung zu erhalten, wird die Schichtenfolge 210 in einem Reaktionsofen einem CVD-Verfahrensschritt ("Chemical Vapour Deposition") unterzogen, in dem bei 700°C Azetylen-Material unter reduziertem Druck in die Verfahrenskammer eingeleitet wird. Dadurch bilden sich ausgehend von dem Eisen-Cluster 102 als Katalysatormaterial-Spot zusätzliche Kohlenstoffnanoröhren 221. Damit ist eine räumlich definierte Verzweigung von Kohlenstoffnanoröhren realisiert.

10

15

Im Weiteren werden bezugnehmend auf Fig.3A bis Fig.3C elektronenmikroskopische Aufnahmen von Kohlenstoffnanoröhren-Anordnungen gemäß bevorzugten Ausführungsbeispielen der Erfindung beschrieben.

20

In der Elektronen-Mikroskopaufnahme 300 aus Fig.3A ist eine primäre Kohlenstoffnanoröhre 301 gezeigt, an der ein Katalysatormaterial-Spot 302 ausgebildet ist. Ausgehend von diesem Katalysatormaterial-Spot 302 aus Eisen-Material ist eine Verzweigung von sekundären Kohlenstoffnanoröhren 303 zu erkennen.

25

In Fig.3B ist eine Elektronenmikroskop-Aufnahme 310 mit besonders großem Vergrößerungsfaktor dargestellt, in der eine primäre Kohlenstoffnanoröhre 311 gezeigt ist. Ausgehend von Katalysatormaterial-Spots 312 an der primären Kohlenstoffnanoröhre 321 sind sekundäre Kohlenstoffnanoröhren 323 gezeigt.

30

35

Fig.3C zeigt noch eine andere Elektronenmikroskop-Aufnahme 320, bei der ausgehend von einem Katalysatormaterial-Spot 322

an einer primären Kohlenstoffnanoröhre 321 eine sekundäre Kohlenstoffnanoröhre 323 aufgewachsen ist.

In diesem Dokument sind folgende Veröffentlichungen zitiert:

- [1] Harris, PJF (1999) "Carbon Nanotubes and Related  
Structures - New Materials for the Twenty-first  
Century.", Cambridge University Press, Cambridge. S.  
1 to 15, 111 to 155
- [2] Li, J, Papadopoulos, C Xu, J (1999) "Nanoelectronics:  
Growing Y-junction carbon nanotubes", Nature 402:253-  
254
- [3] Cheung, CL, Kurtz, A, Park, H, Lieber, CM (2002)  
"Diameter-Controlled Synthesis of Carbon Nanotubes",  
JPhysChemB 106:2429-2433
- [4] Murray, CB, Sun, S, Doyle, H, Betley, T "Monodispersive  
3d Transition-Metal (Co, Ni, Fe) Nanoparticles and  
Their Assembly into Nanoparticle Superlattices", MRS  
Bulletin, December 2001

**Patentansprüche:**

1. Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung,  
bei dem

- 5     • ein erstes Nanoelement zumindest teilweise mit  
Katalysatormaterial zum Katalysieren des Aufwachsens von  
Nanoelementen bedeckt wird;
- auf dem Katalysatormaterial mindestens ein zweites  
Nanoelement aufgewachsen wird.

10

2. Verfahren nach Anspruch 1,  
bei dem das Katalysatormaterial auf dem ersten Nanoelement in  
Gestalt von mindestens einem Cluster aufgebracht wird.

15   3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2,

bei dem das Katalysatormaterial auf dem ersten Nanoelement  
aufgebracht wird, indem das erste Nanoelement mit einer  
Suspension mit Clustern aus Katalysatormaterial in  
Wirkkontakt gebracht wird und nachfolgend das erste  
20   Nanoelement mit mindestens einem daran angelagerten Cluster  
aus der Suspension entfernt wird.

4. Verfahren nach Anspruch 3,

25   bei dem das erste Nanoelement mit dem mindestens einen daran  
angelagerten Cluster resuspendiert und auf einem Substrat  
aufgebracht wird.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 4,

30   bei dem das erste Nanoelement mit mindestens einem daran  
angelagerten Cluster einem Verfahrensschritt zum Ausbilden  
des mindestens einen zweiten Nanoelements unterzogen wird  
derart, dass das mindestens eine zweite Nanoelement an dem  
mindestens einem Cluster aufgewachsen wird.

35   6. Verfahren nach Anspruch 5,

bei dem zum Ausbilden des mindestens einen zweiten  
Nanoelements ein Chemical-Vapour-Deposition-Verfahren

eingesetzt wird.

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6,  
bei dem das Katalysatormaterial zwischen dem ersten und dem  
5 mindestens einen zweiten Nanoelement vernickelt wird.

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7,  
bei dem ein Teilbereich des ersten Nanoelements mit einer  
Schutzschicht bedeckt wird, die von einer für das Aufwachsen  
10 von Nanoelementen katalytischen Wirkung frei ist.

9. Verfahren nach Anspruch 8,  
bei dem als Schutzschicht

- Lack;
- 15 • Tensid;
- ein organisches Material;
- ein oxidiertes Material; oder
- ein von einer für das Aufwachsen von Nanoelementen  
katalytischen Wirkung freies Metall

20 verwendet wird.

10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9,  
bei dem als Katalysatormaterial

- Eisen
- 25 • Kobalt
- Nickel und/oder
- eine Legierung dieser Metalle mit Aluminium, Titan,  
Molybdän und Platin

verwendet wird.

30 11. Nanoelement-Anordnung

- mit einem ersten Nanoelement, das zumindest teilweise  
mit Katalysatormaterial zum Katalysieren des Aufwachsens  
von Nanoelementen bedeckt ist;
- 35 • mit mindestens einem zweiten Nanoelement, das auf dem  
Katalysatormaterial aufgewachsen ist.

12. Nanoelement-Anordnung nach Anspruch 11,  
bei der nur ein Teil des ersten Nanoelements mit  
Katalysatormaterial zum Katalysieren des Aufwachsens von  
Nanoelementen bedeckt ist.

5

13. Nanoelement-Anordnung nach Anspruch 11 oder 12,  
bei der das erste Nanoelement in einer in einem Substrat  
eingebrachten Pore aufgewachsen ist.

10

14. Nanoelement-Anordnung nach Anspruch 13,  
bei der das erste Nanoelement in der Pore auf einer  
Metallisierungsebene in dem Substrat aufgewachsen ist.

15

15. Nanoelement-Anordnung nach einem der Ansprüche 11 bis 14,  
bei der das erste und/oder das mindestens eine zweite  
Nanoelement und/oder mindestens ein zusätzliches Nanoelement  
aufeinander und/oder nebeneinander aufgewachsen sind.

20

16. Nanoelement-Anordnung nach einem der Ansprüche 11 bis 15,  
bei der das erste und/oder das mindestens eine zweite  
Nanoelement

- eine Nanoröhre
- ein Bündel von Nanoröhren oder
- ein Nanostäbchen

25

aufweist.

30

17. Nanoelement-Anordnung nach Anspruch 16,  
bei der das Nanostäbchen

- Silizium
- Germanium
- Indiumphosphid
- Galliumnitrid
- Galliumarsenid
- Zirkoniumoxid und/oder

35

• ein Metall  
aufweist.

18. Nanoelement-Anordnung nach Anspruch 16,  
bei der die Nanoröhre

- eine Kohlenstoffnanoröhre
- eine Kohlenstoff-Bor-Nanoröhre
- 5 • eine Kohlenstoff-Stickstoff-Nanoröhre
- eine Wolframsulfid-Nanostruktur oder eine
- eine Chalkogenid-Nanoröhre

ist.

10 19. Nanoelement-Anordnung nach Anspruch 16,  
bei der das erste und/oder das mindestens eine zweite  
Nanoelement eine Kohlenstoffnanoröhre ist und bei der das  
Katalysatormaterial

- Eisen
- 15 • Kobalt
- Nickel und/oder
- eine Legierung dieser Metalle mit Aluminium, Titan,  
Molybdän und Platin

aufweist.

20

20. Nanoelement-Anordnung nach einem der Ansprüche 11 bis 19,  
die einen integrierten Schaltkreis aufweist, der mit ersten  
und/oder dem mindestens einen zweiten Nanoelement gekoppelt  
ist.

25

21. Nanoelement-Anordnung nach einem der Ansprüche 11 bis 20,  
bei der die Nanoelemente ein mehrfach verzweigtes Netzwerk  
bilden.

30



## **Zusammenfassung**

### **Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung und Nanoelement-Anordnung**

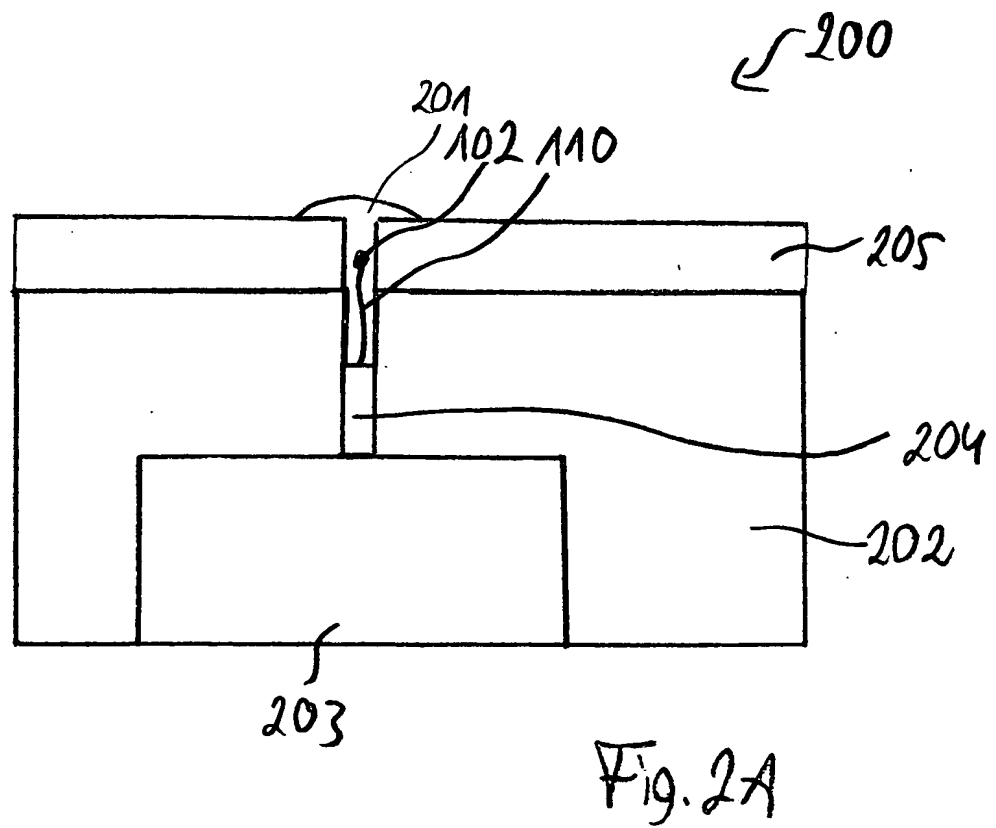
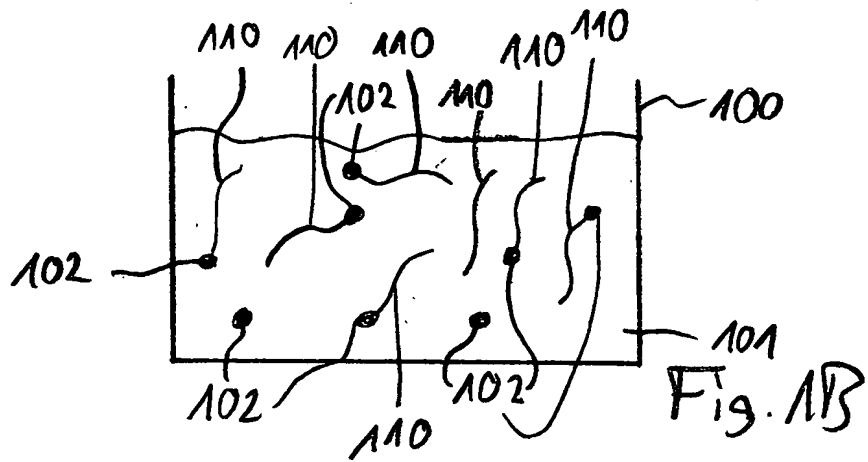
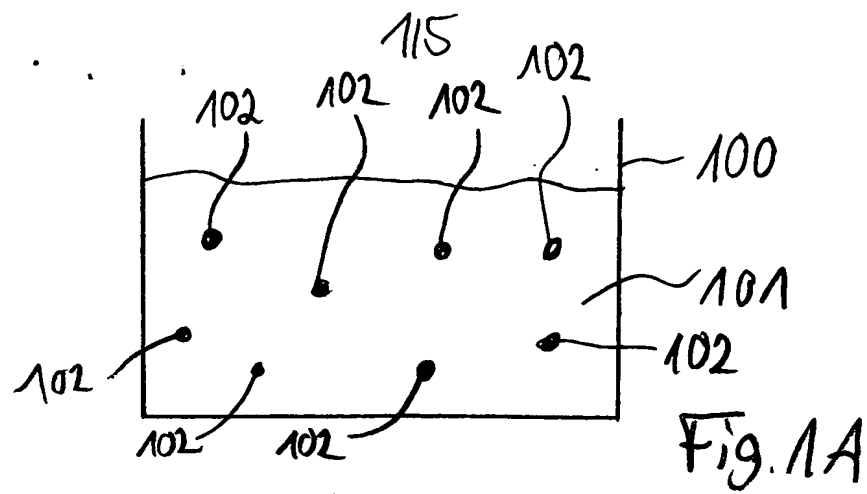
5

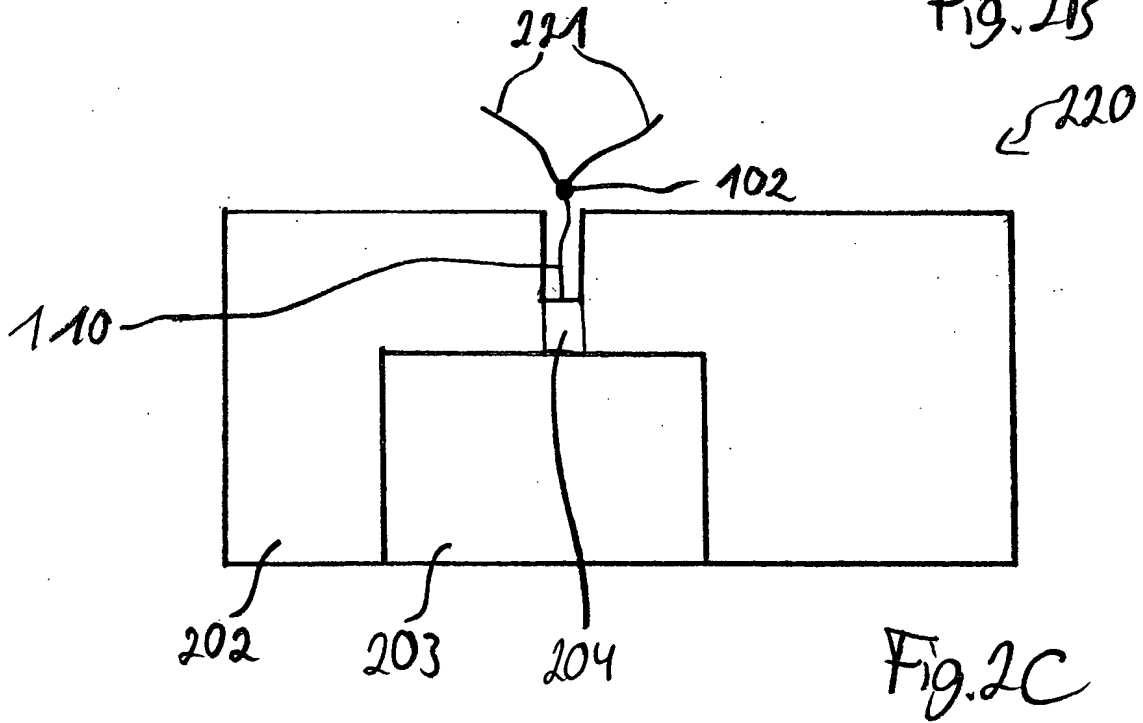
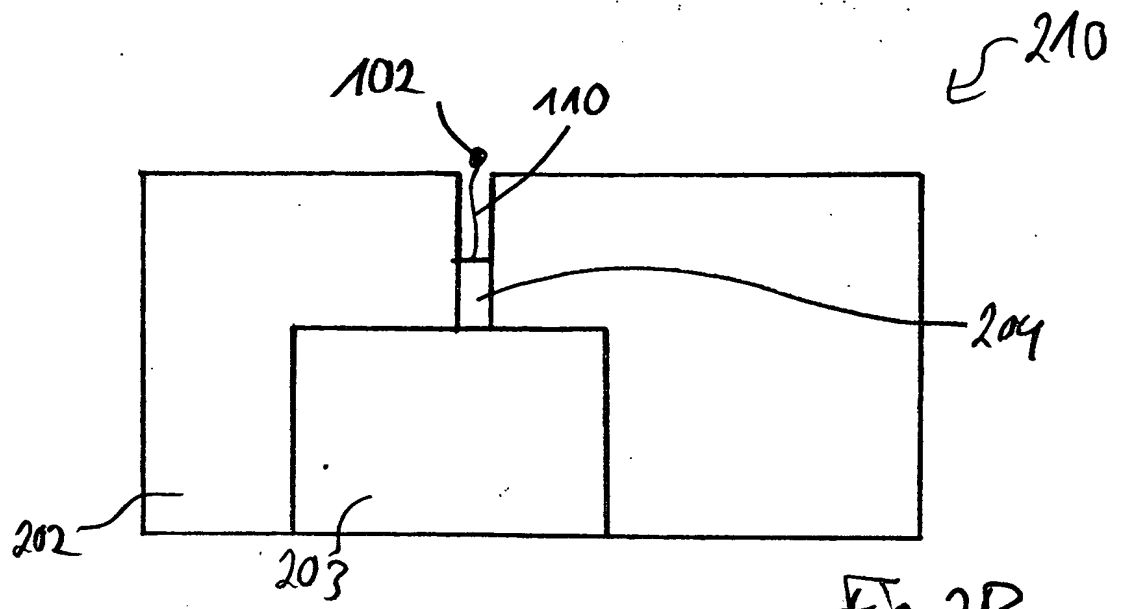
Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung und eine Nanoelement-Anordnung. Bei dem Verfahren zum Herstellen einer Nanoelement-Anordnung wird ein erstes Nanoelement zumindest teilweise mit

10 Katalysatormaterial zum Katalysieren des Aufwachsens von Nanoelementen bedeckt. Ferner wird auf dem Katalysatormaterial mindestens ein zweites Nanoelement aufgewachsen.

## Bezugszeichenliste

- 100 Behälter
- 101 Toluol
- 102 Eisencluster
- 110 Kohlenstoffnanoröhren
- 200 Schichtenfolge
- 201 Dimethylformamid
- 202 Silizium-Substrat
- 203 integrierter Schaltkreis
- 204 elektrisch leitfähiges Kopplungsmittel
- 205 Photoresist-Schicht
- 210 Schichtenfolge
- 220 Kohlenstoffnanoröhren-Anordnung
- 221 zusätzliche Kohlenstoffnanoröhren
- 300 Elektronenmikroskop-Aufnahme
- 301 primäre Kohlenstoffnanoröhre
- 302 Katalysatormaterial-Spot
- 303 sekundäre Kohlenstoffnanoröhren
- 310 Elektronenmikroskop-Aufnahme
- 311 primäre Kohlenstoffnanoröhre
- 312 Katalysatormaterial-Spot
- 313 sekundäre Kohlenstoffnanoröhren
- 320 Elektronenmikroskop-Aufnahme
- 321 primäre Kohlenstoffnanoröhre
- 322 Katalysatormaterial-Spot
- 323 sekundäre Kohlenstoffnanoröhren





315

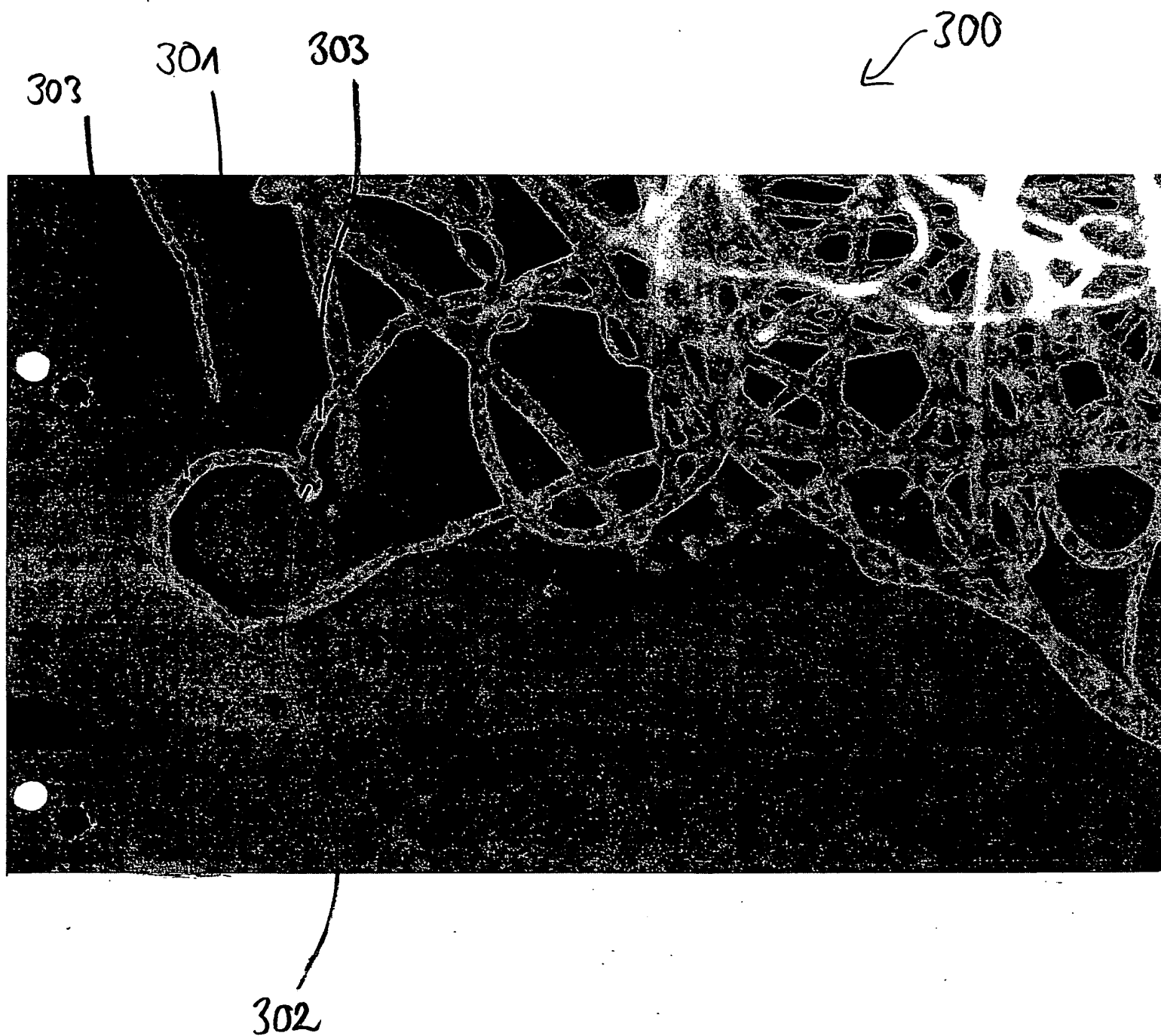
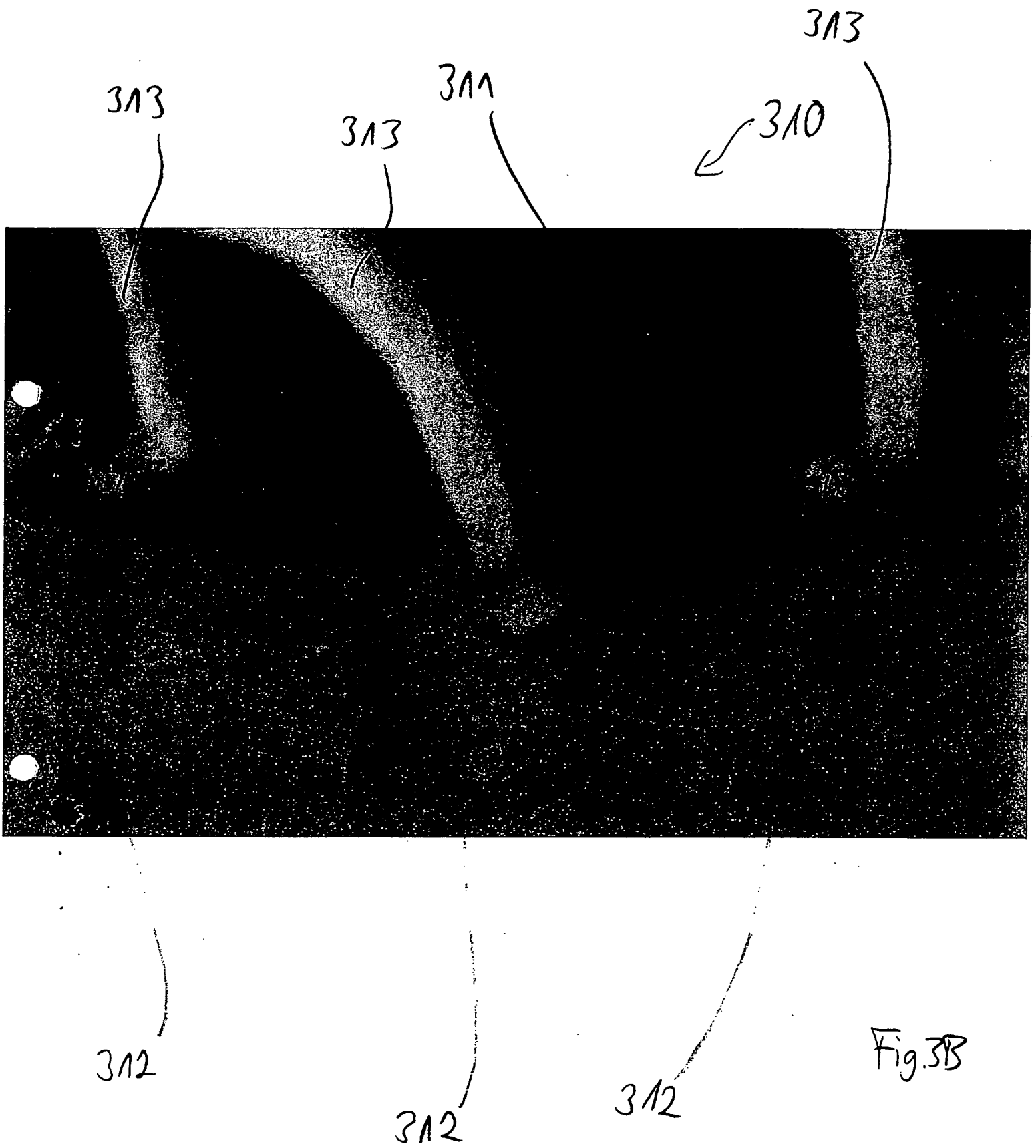
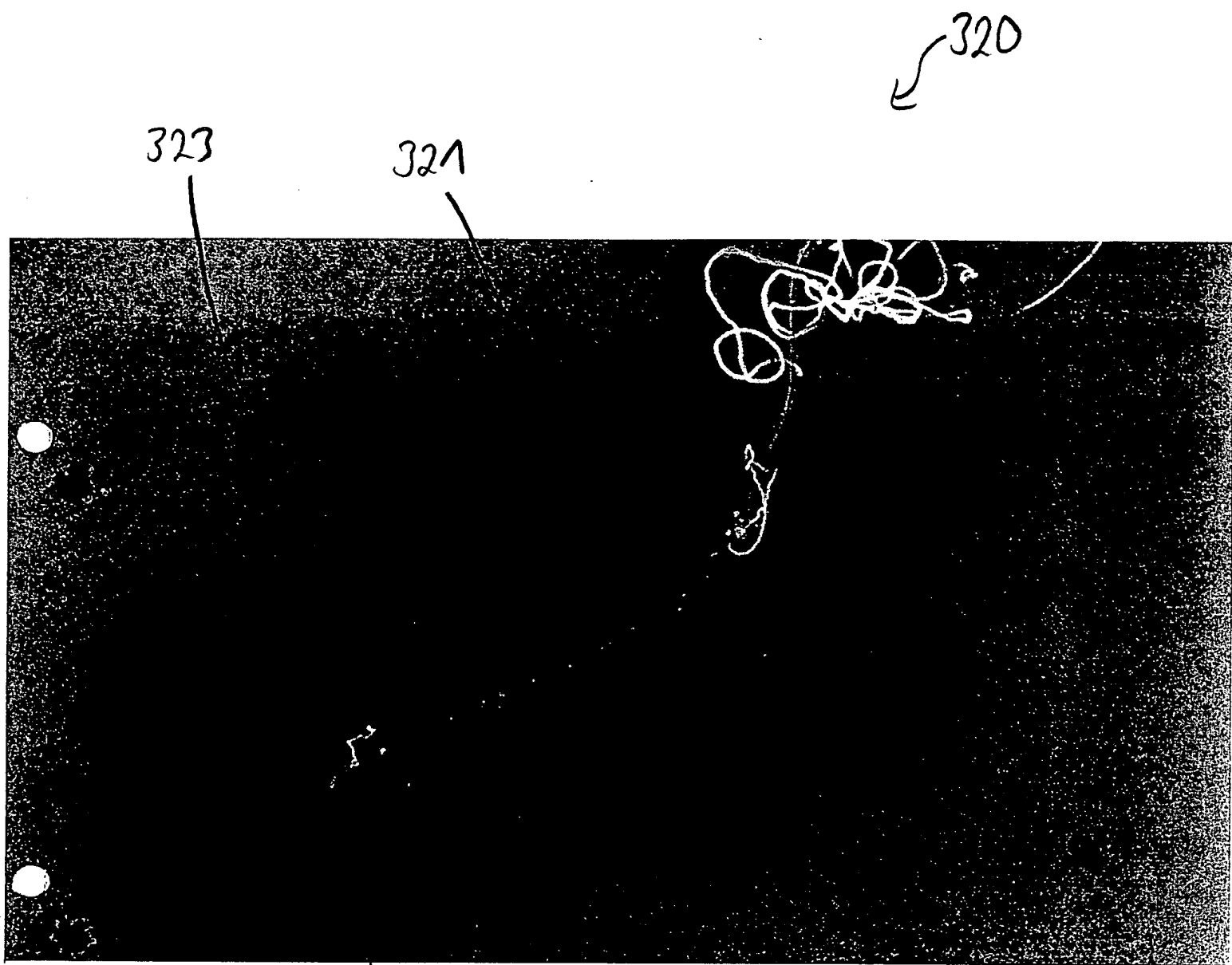


Fig. 3A





320

323

321

322'

Fig. 3C

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**